

# AVALIAÇÃO DA DEGRADAÇÃO DE CEFALEXINA POR PROCESSO OXIDATIVO AVANÇADO UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> EM SOLUÇÃO AQUOSA

Taciélen Altmayer<sup>1\*</sup>, Gustavo Reisdörfer<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Graduanda do curso de Engenharia Química, Universidade do Vale do Taquari, 95914-014, Lajeado/RS, Brasil.

<sup>2</sup>Coordenador do curso de Engenharia Química, Universidade do Vale do Taquari, 95914-014, Lajeado/RS, Brasil.

\*E-mail: [tacielen.altmayer@universo.univates.br](mailto:tacielen.altmayer@universo.univates.br)

Recebido em:

Aceito em:

## RESUMO

O desenvolvimento de processos de tratamento água e efluentes é fundamental para o bem-estar humano e ambiental. Os fármacos têm ganhado destaque como poluentes emergentes, pois mesmo em baixas concentrações trazem problemas ao meio ambiente. Dentre os fármacos estudados, os antibióticos são um dos mais preocupantes pois podem causar resistência bacteriana. Dentre os antibióticos, um dos mais utilizados atualmente é a cefalexina. Nesse segmento, destacam-se os Processos Oxidativos Avançados (POAs), em muitos casos considerados mais eficazes que processos convencionais. Neste trabalho, o objetivo foi avaliar a degradação do antibiótico cefalexina em solução aquosa por meio de POA baseado na combinação entre lâmpada de mercúrio de radiação ultravioleta (UV) e peróxido de hidrogênio (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>). Para isto utilizou-se um reator do tipo PFR (*Plug Flow Reactor*) de vidro, em combinação com três lâmpadas com radiação UV, protegidos por uma caixa de madeira. Diferentes pHs e concentrações de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> foram avaliados. A concentração de cefalexina foi estabelecida em 30 ppm. O H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> foi adicionado na água junto com o analito. A cefalexina e H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> foram determinados por espectrofotometria de absorção molecular (UV). Depois de estabelecida a melhor condição foi realizado reciclo de 25, 50, 75 e 100% do experimento. Como resultados, tem-se que a melhor condição para degradação foi 70 ppm de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> e pH 10. A partir dela, e considerando um reciclo de 100%, a melhor remoção foi de 26,14%. Assim, conclui-se que é possível degradar o antibiótico, contudo o ideal seria utilizar um reator de quartzo para melhor degradação da cefalexina.

**Palavras-chave:** Antibiótico. POA. Tratamento de água. PFR.

## 1 Introdução

Nas últimas décadas, órgãos regulamentadores têm observado a presença de diversas substâncias orgânicas naturais e sintéticas no ambiente devido aos potenciais riscos que podem trazer ao ambiente, à saúde humana e animal [1 - 8].

A produção e uso crescente de compostos químicos e a carência de políticas de controle relacionadas com critérios toxicológicos e ambientais, têm como consequência o aparecimento destes micropoluentes. Estas substâncias têm uma série de compostos orgânicos exógenos ou endógenos que vêm sendo detectados em diferentes ambientes [9].

A liberação de efluentes em recursos hídricos é considerada como a principal causa da presença de micropoluentes em águas superficiais em comparação com outras fontes [6]. Constantemente, estas substâncias são descarregadas em rios, chegando às estações de tratamento de água (ETAs) que não estão equipadas para a sua remoção.

Desta forma, os micropoluentes podem se bioacumular em organismos aquáticos e humanos [8, 10].

Produtos farmacêuticos podem oferecer potenciais riscos para o ecossistema, bem como desregulação endócrina e efeitos colaterais graves, já que são originalmente fabricados para causarem efeitos biológicos específicos. Ao ingerir uma dosagem de fármaco, aproximadamente 50% a 90% é excretada inalterada pelo organismo, passando, então, a fazer parte do efluente doméstico e persistindo no meio ambiente [11]. Por estas razões, a poluição emergente por compostos fármacos se tornou um problema ambiental em todo o mundo. Assim, a frequente ocorrência destes compostos no meio ambiente, inclusive na água, tem levantado questão sobre o seu impacto ambiental e à saúde pública [12].

Alguns fármacos são mais preocupantes por apresentar características mais agressivas ao meio ambiente. Segundo Kümmerer [3] e Rivera-Utrilla et al. [13], os efeitos nocivos desses poluentes nos ecossistemas são devido à sua atividade biológica, como o caso dos antibióticos, que podem apresentar persistência por meses e até anos. A presença de antibióticos no

meio aquático é uma preocupação grande porque torna as bactérias resistentes, prejudicando sua eficácia e causando problemas à saúde pública [3, 10].

O desenvolvimento da resistência antimicrobiana é favorecido mesmo em baixas concentrações, em alguns rios já se encontram concentrações em  $\text{ng.L}^{-1}$  [4-5, 7, 14]. A toxicidade antibiótica geralmente não resulta do uso de antibióticos como tal, mas sim da sua descarga em ambientes naturais [6].

A cada ano mais antibióticos são produzidos. Conforme Brown et al. [15], mais de 20 mil toneladas de antibióticos foram produzidas nos EUA no ano 2005. Enquanto na China, conforme Hao et al. [16], são produzidas 210 mil toneladas de antibióticos todos os anos.

De acordo com *European Centre for Disease Prevention and Control* [17], houve um aumento alarmante na resistência destes fármacos. Nos últimos quatro anos, cerca de 33% dos países europeus mostram aumento da resistência combinada a cefalosporinas, principalmente as de terceira geração, fluoroquinolonas e aminoglicosídeos [17].

Segundo *Centers for Disease Control and Prevention* [18], todos os anos, nos Estados Unidos, pelo menos 2 milhões de pessoas ficam infectadas com bactérias que são resistentes à antibióticos, e pelo menos 23 mil pessoas morrem todos os anos como resultado direto dessas infecções.

A cefalexina é um dos antibióticos mais consumidos nos EUA, esta droga é a terceira mais prescrita, precedida da Azitromicina e Amoxicilina, respectivamente [19].

No Brasil, a cefalexina é um dos mais prescritos. Em Imperatriz (Maranhão), a cefalexina é o antibiótico mais prescrito em 27,1% das consultas [20]. Em João Pessoa (Paraíba), a Cefalexina é a terceira mais prescrita, antecedendo apenas Amoxicilina e Azitromicina, simultaneamente. Os antibióticos mais prescritos são os  $\beta$ -lactâmicos, 36,81% [21]. Enquanto na região Sul do país, na cidade de Ijuí, Rio Grande do Sul, Oliveira e Destefani [22], avaliaram os antibióticos receitados para crianças e identificaram que a Cefalexina teve apenas 3% das prescrições, no qual Azitromicina foi o mais receitado (45%), seguido de Amoxicilina (40%).

Além do uso humano, a cefalexina é, também, um medicamento usado em veterinária. Sendo utilizado por via intramuscular, no tratamento de infecções de bovinos, ovinos e suínos [23].

O Brasil não tem normas de controle de micropoluentes. Contudo, a União Europeia, em 20 de maio de 2015, publicou uma legislação, UE 2015/495, na qual relata uma lista de substâncias para seu monitoramento, incluindo produtos

farmacêuticos, antibióticos, hormônios naturais e sintéticos, alguns pesticidas, filtro ultravioleta (UV) e um antioxidante comumente utilizado como aditivo alimentar [24].

Os recursos hídricos, efluentes, e afluentes, de estações de tratamento de efluentes (ETEs) e ETAs apresentam uma grande diversidade de resíduos e, conseqüentemente, uma grande complexidade química. Isto é refletido em diferentes níveis de toxicidade, com fatores de bioacumulação muito particulares para cada um dos diferentes compostos presentes nestes tipos de amostra. Desta forma, pode-se deduzir que os processos de tratamento convencionais utilizados dificilmente irão atuar com a mesma eficiência sobre as classes de compostos recalcitrantes. Por este motivo, são necessárias análises que requerem um esforço analítico considerável em função da complexidade dos ecossistemas e da baixa concentração de micropoluentes no ambiente [6, 25].

Os processos convencionais de tratamento de água não têm capacidade para remoção destes compostos, pois, por menor que sejam suas concentrações, são biologicamente ativas e podem causar danos irreversíveis e tóxicos ao meio ambiente [12,26].

A partir disso alguns processos alternativos são utilizados, como os Processos Oxidativos Avançados (POAs) que podem auxiliar na redução destes compostos nas águas. A alta reatividade do radical hidroxila (OH) é a principal vantagem atribuída a sua utilização, uma vez que ele é prontamente consumido por meio da degradação de um amplo espectro de poluentes [27]. Estes POAs usam técnicas de oxidação química que geram os radicais OH extremamente reativos e transformam as substâncias indesejáveis em outras, na maioria das vezes, menos tóxicas [12, 28–29].

Os POAs visam mineralizar os poluentes convertendo-os inteiramente em  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  e ácidos minerais, geralmente em temperatura ambiente. Para isso, faz-se o uso de um reator fotoquímico [27, 30]. Os reatores fotoquímicos podem ser classificados quanto a fonte de radiação, presença ou não de catalisadores ou quanto ao regime hidráulico [31].

Por não serem removidos em tratamento convencional, o estudo dos micropoluentes é cada vez mais importante, além de apresentar elevada toxicidade, capacidade de bioacumulação e por apresentar efeitos de longo prazo que podem se manifestar nos organismos contaminados. Dessa forma, torna-se importante avaliar a qualidade das águas, verificar a presença de compostos orgânicos e propor um tratamento eficaz para garantir qualidade aos consumidores. Assim sendo, o objetivo deste estudo consiste em avaliar a degradação da cefalexina por Processo Oxidativo Avançado (POA) utilizando radiação ultravioleta e peróxido de hidrogênio ( $\text{UV/H}_2\text{O}_2$ ) em solução aquosa.

## 2 Parte Experimental

Todos os testes foram realizados na Universidade do Vale do Taquari.

### 2.1 Montagem do sistema POA

Para a degradação da cefalexina com processo oxidativo avançado (POA), foi utilizada uma bancada da UP Control, com um *Plug Flow Reactor* (PFR) de vidro com controle de vazão. Este reator atua em regime contínuo e foi envolto por uma caixa de madeira com três lâmpadas de vapor de mercúrio de 125 W com radiação ultravioleta com comprimento de onda em 260 nm (Figura 1).

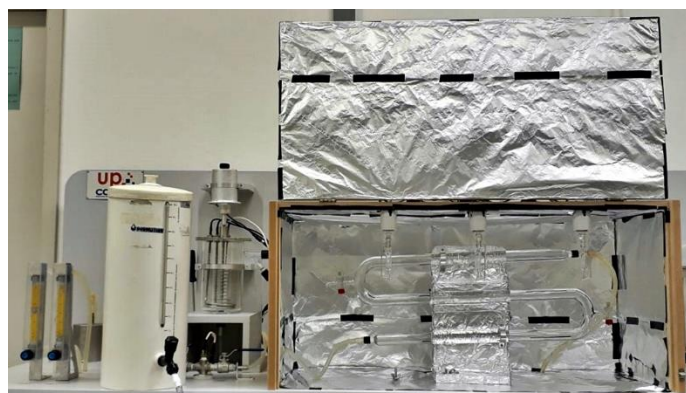


Figura 1 – Plug Flow Reactor de bancada protegido por uma caixa de madeira com três lâmpadas de mercúrio instaladas.

O PFR é isolado por uma caixa de madeira forrada com papel alumínio, para que a luminosidade da lâmpada fique concentrada e para proteção contra radiação UV.

Após realizado o teste com todas as condições de pH e concentrações de  $H_2O_2$ , apresentadas no item 2.2, os dados foram tabulados e o teste que apresentou maior remoção foi utilizado para realização de reciclo.

Para isto, uma bomba peristáltica da marca Exatta, modelo EX1 foi utilizada. Foram reciclados 25, 50, 75 e 100% do efluente que deixou o PFR durante 30, 35, 40 e 45 min, respectivamente. Esta quantidade retornou para o tanque de entrada e passou novamente pelo POA.

Após, um teste reciclando 100% do efluente foi feito, contudo deixando que ocorresse o reciclo por 3 h.

### 2.2 Variáveis analisadas

Inicialmente os testes foram realizados conforme Tabela 1, variando-se concentração de  $H_2O_2$  e pH.

Tabela 1 - Concentrações de  $H_2O_2$  e pH utilizados para realização dos testes.

Teste	1	2	3	4	5	6	7	8	9
[ $H_2O_2$ ]	0	45	70	0	45	70	0	45	70

(ppm)									
pH	4	4	4	7	7	7	10	10	10

A concentração de cefalexina utilizada foi 30 ppm, a partir de uma solução mãe de 5000 ppm que foi preparada com comprimidos da marca EMS e deixada em repouso durante 40 minutos em ultrassom. Enquanto o  $H_2O_2$  foi adicionado aos testes através de uma solução mãe de 5000 ppm. O ajuste do pH foi feito com NaOH e HCl 0,1 M. Todos os testes utilizaram água destilada.

A vazão do trabalho foi 6 L/h. Para cada teste, 10 L de solução foram incididos no PFR, sendo 2 L utilizados somente para preenchimento das tubulações e PFR.

### 2.3 Determinação da Cefalexina

Para a quantificação da cefalexina, uma curva de calibração foi realizada em um espectrofotômetro de absorção molecular (UV) da marca Thermo Scientific®, modelo Genesys 10S UV-Vis utilizando comprimento de onda 262 nm.

Uma solução de trabalho com 500 ppm de cefalexina foi preparada a partir da solução mãe de 5000 ppm. A partir desta solução foi preparada a curva de calibração com 1, 3, 5, 10, 15, 20, 25, 30, 35 e 40 ppm de cefalexina em balões de 10 mL. O volume foi completado com água destilada.

As concentrações do antibiótico, antes e após passar pelo PFR, foram definidas através da equação da reta obtida pela curva de calibração. As leituras foram realizadas em cubetas de quartzo.

A eficiência de Remoção da cefalexina foi calculada pela Equação 1:

$$Remoção(\%) = 1 - \left( \frac{C_f}{C_i} \right) \times 100(1)$$

Em que:  $C_f$  é a concentração final e  $C_i$  é a concentração inicial.

### 2.4 Determinação do Peróxido de Hidrogênio

Preparou-se uma solução de trabalho de 5000 ppm de  $H_2O_2$  e a partir desta fez-se a curva de calibração de concentrações 1, 5, 10, 15, 20, 25, 50, 75 ppm. Após pipetar as quantidades necessárias para cada concentração, 4 mL de metavanadato de amônio foi adicionado ao balão volumétrico de 50 mL, que foi avolumado com água.

Para as leituras utilizou-se o mesmo espectrofotômetro de absorção molecular da cefalexina para a determinação do

H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, contudo com comprimento de onda 450 nm. Todas as leituras foram feitas em cubetas de quartzo.

A determinação de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> das amostras foi realizada adicionando-se 2 mL da amostra em balão volumétrico de 25 mL com 2 mL de metavanadato de amônio e completou-se o volume com água destilada.

### 3 Resultados e discussões

Inicialmente foi realizado um teste no PFR com todas as condições apresentadas na Tabela 1.

Os resultados dos testes realizados estão expressos na Tabela 2.

Tabela 2 - Remoção (%) de cefalexina utilizando diferentes concentrações de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> e pH após 10, 15, 20 e 25 min de degradação por POA UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>.

Teste	Remoção de cefalexina após			
	10 min	15 min	20 min	25 min
1	0,79%	0,88%	1,03%	1,08%
2	2,47%	3,29%	3,43%	3,77%
3	2,83%	4,12%	4,46%	4,56%
4	0,65%	0,75%	0,60%	0,65%
5	1,12%	1,31%	1,46%	1,46%
6	1,58%	2,01%	2,06%	2,11%
7	1,06%	1,41%	1,46%	1,71%
8	10,32%	10,41%	10,42%	10,47%
9	13,36%	15,76%	15,86%	15,91%

Através dos dados apresentados na Tabela 2 foi possível observar que a partir de 15 min houve uma maior estabilização da degradação. Além disso, elegeu-se como melhor condição o nono teste, com pH 10 e 70 ppm de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, pois foi o que apresentou maior degradação do analito (15,91%).

Conforme pode-se observar na Tabela 2, a degradação da cefalexina foi favorecida com pH 10. Guo et al. [32] encontraram o oposto. Com pH entre 6,5 e 8,5 a degradação foi maior, aproximadamente 50%, após 150 min. Enquanto para o pH 10 os autores encontraram apenas 11% de degradação.

Collado et al. [33], avaliaram a utilização de uma lâmpada UV para irradiação de amostras de uma estação de tratamento convencional de água e abastecimento e obtiveram remoção de 35% e 70% de remoção de

ciprofloxacina, sulfametoxazol e trimetoprima após 3 a 9 horas de exposição a luz.

Estes valores são maiores do que os encontrados neste estudo, conforme comparação com a Tabela 2, mesmo sem utilização de catalizador.

Bansal et al. [34] avaliaram fotocatalise utilizando UV/TiO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> para remoção de cefalexina com reator em batelada e degradaram 93,47% do antibiótico, depois de 2 h.

A Tabela 3 mostra as concentrações e remoção média do H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> utilizado neste estudo.

Tabela 3 - Concentração (ppm) e remoção (%) de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> utilizando diferentes concentrações de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> e pH após 10, 15, 20 e 25 min de degradação por POA UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>.

Teste	Tempo	Concentração de H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (ppm)					Remoção média de H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (%)
		Inicial	10 min	15 min	20 min	25 min	
2	45	45	20,62	20,62	20,62	20,62	54%
3	70	70	51,46	51,46	51,46	51,46	26%
5	45	45	22,24	20,62	18,99	18,99	54%
6	70	70	51,46	49,84	49,84	49,84	26%
8	45	45	20,62	20,62	18,99	18,99	54%
9	70	70	51,46	51,46	51,46	51,46	26%

Pode-se observar que a concentração de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> deste estudo se manteve praticamente estável. Sacamoto [35], utilizando degradação por Fenton em amoxicilina, também obteve o mesmo comportamento. Ao término de 30 min o autor encontrou uma remoção em torno de 50% em suas amostras que variaram de 15 a 60 ppm de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>.

Ainda, Souza [36], ao estudar a degradação do herbicida atrazina, também encontrou o mesmo resultado. A concentração de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> permaneceu inalterada após 120 min.

Desta forma, poderia ser utilizado um catalizador para acelerar o processo da formação de radicais OH para degradação mais rápida e eficiente do H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> [35].

Posteriormente, com a melhor condição apresentada (Teste 9), foi realizado no PFR, em conjunto com uma bomba peristáltica testes com reciclo de 25, 50, 75 e 100%. Estes resultados estão expressos na Tabela 4.

Tabela 4 - Remoção (%) de cefalexina e H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> utilizando pH 10 e 70 ppm de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> para degradação por POA UV/ H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> com diferentes reciclos.

Reciclo	Remoção de cefalexina após										Remoção H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>
	0 min	5 min	10 min	15 min	20 min	25 min	30 min	35 min	40 min	45 min	

<b>25%</b>	5,96%	7,84%	8,90%	9,01%	8,90%	10,51%	10,68%	-	-	-	7,71%
<b>50%</b>	7,73%	11,46%	12,07%	12,07%	13,46%	13,51%	15,62%	18,07%	-	-	12,42%
<b>75%</b>	7,90%	12,07%	12,62%	14,01%	15,34%	16,12%	16,68%	18,07%	19,79%	-	15,85%
<b>100%</b>	10,84%	12,90%	14,01%	15,73%	16,29%	17,51%	18,79%	19,73%	20,12%	21,62%	20,57%

A maioria dos estudos de degradação de antibióticos [12, 27, 32–34, 37–40] utilizaram reatores em batelada, o que facilita a degradação dos analitos. Por este motivo utilizou-se um reator PFR de fluxo contínuo com reciclo, para avaliar a possibilidade de encontrar uma degradação aceitável para utilização deste tipo de reator.

Na Tabela 4, observa-se que quanto maior o percentual de reciclo, mais a cefalexina é removida, o mesmo acontece para o  $H_2O_2$ . Ainda a degradação do  $H_2O_2$  pode ter aumentado pois o teste 25% foi o primeiro a ser realizado e o teste 100% foi o último. Isso pode ter ocasionado a degradação do  $H_2O_2$  enquanto ele estava em repouso, antes de entrar para o PFR.

Além disso, um teste foi realizado reciclando 100% de uma solução com as condições anteriores, mas com degradação de 3 h. Os resultados estão expressos na Tabela 5.

Tabela 5 - Remoção (%) de cefalexina e  $H_2O_2$  utilizando pH 10 e 70 ppm de  $H_2O_2$  para degradação por POA UV/  $H_2O_2$  com 100% de reciclo durante 3 h.

<b>Tempo (min)</b>	<b>0</b>	<b>15</b>	<b>30</b>	<b>45</b>	<b>60</b>	<b>75</b>	<b>90</b>
<b>Remoção de cefalexina</b>	9,31%	10,11%	11,25%	12,48%	13,73%	15,03%	16,59%
<b>Tempo (min)</b>	<b>105</b>	<b>120</b>	<b>135</b>	<b>150</b>	<b>165</b>	<b>180</b>	
<b>Remoção de cefalexina</b>	17,21%	18,48%	20,26%	21,18%	23,02%	26,14%	
<b>Remoção de <math>H_2O_2</math> em 180 min</b>				20,59%			

Mesmo após 3 h de degradação (Tabela 5) não foi possível obter um % de degradação aceitável para a utilização deste método. Ainda mais porque o processo UV/ $H_2O_2$  é um dos POAs com maior custo, pois possui altos custos com energia para alimentar a lâmpada, lâmpadas caras e valor elevado do oxidante utilizado [41].

Ainda, de acordo com Sánchez e Dallarosa [42] a utilização de cubetas de quartzo para leitura em espectrofotômetro com irradiação de lâmpada UV é mais eficaz do que com cubeta de vidro, pois o vidro absorve os raios da luz, enquanto o quartzo não.

O mesmo aconteceu neste estudo, no qual utilizou-se um PFR de vidro com irradiação de lâmpada UV que provavelmente refletiu os raios da lâmpada, ao invés de passar pelo reator.

Desta forma, o ideal seria utilizar um reator de quartzo ou um reator que fosse aberto na parte superior para que fosse

possível a irradiação da luz entrar diretamente em contato com a amostra.

## 4 Conclusões

A utilização de reatores de vidro não é eficaz para o tratamento por POA UV/ $H_2O_2$ , uma vez que a remoção de cefalexina foi muito inferior a encontrada por autores que utilizaram POA com reatores de quartzo ou reações em batelada com tanques abertos.

Quanto a degradação do  $H_2O_2$ , foi possível observar que outros autores também encontraram resultados parecidos, onde ocorreu a estabilização da remoção do mesmo.

## Agradecimentos

Aos meus pais, que sempre me apoiaram, em todas as minhas decisões, e não mediram esforços para me ajudar a realizar meus sonhos. Por toda educação, conselhos e puxões de orelha.

À minha irmã, que foi, é e sempre será um dos principais motivos da minha dedicação e tentativas de me tornar alguém melhor a cada dia.

Ao meu namorado, por todo apoio, pela paciência, carinho e, principalmente, por todo incentivo nos momentos que mais precisei. Por todo café, comida e doces preparados enquanto eu estudava. Por ser meu porto seguro e por sempre lembrar do meu potencial e acreditar nele!

Ao meu primo Darlan Ghillioni pela caixa utilizada neste estudo e ao meu pai e meu namorado pela ajuda com a instalação elétrica.

Ao professor e orientador, Gustavo Reisdörfer, por toda ajuda, orientação, amizade e conselhos, desde o início desta jornada, também por não ter deixado eu desistir do meu objetivo.

Aos integrantes do projeto de pesquisa sobre Micropoluentes da Univates pela disponibilidade e ajuda quando necessário, em especial ao colega Daniel Kuhn e a professora Lucélia Hoehne.

Às minhas amigas Débora Brietzke e Maira Martini, por toda amizade, carinho, incentivo e, principalmente, pelos momentos de alegria compartilhados, por tornaram este momento conturbado mais leve.

Às colegas, e agora amigas, Bárbara Weber, Caroline Lenz e Júlia Prediger, por todas as angústias compartilhadas e por todas as gargalhadas de alívio dadas.



Aos meus colegas de trabalho, por toda compreensão e pelos momentos de descontração durante este período turbulento.

Às demais amizades que construí durante a graduação, e que quero levar para a vida.

Aos professores do curso de Engenharia Química que contribuíram para minha formação, pela dedicação e orientações.

Agradeço também a todos que colaboraram com a execução deste trabalho e àqueles que torceram e sempre desejaram o melhor para mim e para a realização deste sonho.

Ao universo, por ter me levado até a Univates, por colocar pessoas especialíssimas em minha vida e por me provar, a cada dia, que nada acontece por acaso e tudo acontece no seu tempo.

---

## EVALUATION OF CEFALOXIN DEGRADATION BY UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ADVANCED OXIDATIVE PROCESS IN AQUEOUS SOLUTION

**ABSTRACT:** The development of water and effluent treatment processes is fundamental to human and environmental well-being. Drugs have gained prominence as emerging pollutants, because even in low concentrations bring problems to the environment. Among the drugs studied, antibiotics are one of the most worrying because it causes bacterial resistance. Among the antibiotics, one of the most frequently used is cephalexin. In this segment, the Advanced Oxidative Processes (AOPs) stand out, in many cases considered more effective than conventional processes. In this work, the objective was to evaluate the degradation of the antibiotic cephalexin in aqueous solution by AOP based on the combination of mercury lamp of ultraviolet (UV) radiation and hydrogen peroxide (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>). A glass PFR (Plug Flow Reactor) type reactor was used in combination with three lamps with UV radiation, protected by a wooden box. Different pHs and H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> concentrations were evaluated. The cephalexin concentration was set at 30 ppm. H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> was added to the water along with the analyte. Cephalexin and H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> were determined by molecular absorption spectrophotometry (UV). After the best condition was established, 25, 50, 75 and 100% of the experiment was recycled. As a result, it has been found that the best degradation condition was 70 ppm H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> and pH 10. From this, and considering a recycle of 100%, the best removal was 26.14%. Thus, it is concluded that it is possible to degrade the antibiotic, however the ideal would be to use a quartz reactor for better degradation of cephalexin.

**Keywords:** Antibiotic. POA. Water treatment. PFR.

---

## Referências

[1] KOLPIN, D. W.; FURLONG, E. T.; MEYER, M. T.; THURMAN E. M.; ZAUGG, S. D.; BARBER, L. B.; BUXTON, H. T. Pharmaceuticals, hormones, and other organic wastewater contaminants in U.S. streams, 1999–2000: A national reconnaissance. *Environ. Sci. Technol.*, v. 36, 2002.

[2] GHISELLI, G.; JARDIM, W. F. Endocrine disruptors in the environment. *Quím. Nova*, São Paulo, v. 30, n. 3, 2007.

[3] KÜMMERER, K. Antibiotics in the aquatic environment: a review - part I. *Chemosphere*, v. 75, p. 417-434, 2009.

[4] DEMEESTERE, K.; PETROVIC, M.; GROS, M.; DEWULF, J.; VAN LANGENHOVE, H.; BARCELÓ, D. Trace analysis of antidepressants in environmental waters by molecularly imprinted polymer-based solid-phase extraction followed by ultra-performance liquid chromatography coupled to triple quadrupole mass spectrometry. *Anal. Bioanal. Chem.*, v. 825, n. 37, 2010.

[5] ALONSO, S. G.; CATALÁ, M.; MAROTO, R. R.; GIL, J. L. R.; MIGUEL, A. G.; VALCÁRCAL, Y. Pollution by psychoactive pharmaceuticals in the Rivers of Madrid metropolitan area (Spain). *Environ. Int.*, v. 36, n. 2, p. 195-201, 2010.

[6] LUO, Y.; GUO, W.; NGO, H. H.; NGHIEM, L. D.; HAI, F. I. A review on the occurrence of micropollutants in the aquatic environment and their fate and removal during wastewater treatment. *University of Wollongong Research Online*, v. 473-474, p. 619-641, 2014.

[7] AROLA, K.; HATAKKA, H.; MÄNTTÄRI, M.; KALLIOINEN, M. Novel process concept alternatives for improved removal of micropollutants in wastewater treatment. *Separation and Purification Technology*, v. 186, p. 333-341, 2017.

[8] RODRIGUEZ-NARVAEZA O. M.; PERALTA-HERNANDEZA, J. M.; GOONETILLEKEB, A.; BANDALA, E. R. Treatment technologies for emerging contaminants in water: A review. *Chemical Engineering Journal*, v. 323, p. 361-380, 2017.

[9] SUMPTER, J. P.; JOHNSON, A. C. Lessons learned from endocrine disruption and their application to other issues concerning trace organics in the aquatic environment. *Environ. Sci. Technol.*, v. 39, n. 12, p. 4321-4332, 2005.

[10] VERLICCHI, P.; ZAMBELLO, E. Pharmaceuticals and personal care products in untreated and treated sewage sludge: Occurrence and environmental risk in the case of application on soil - A critical review. *Sci. Total Environ.*, v. 538, p. 750-767, 2015.

[11] MULROY, A. Monitoring and Analysis of Water and Wastes. *Water Environment Technology*, v. 13, n. 2, p. 32-36, 2001.

[12] SANTOS, L. V. de S. Utilização de Processos Biológicos e Oxidativos Avançados no tratamento dos antibióticos norfloxacin e sulfato de gentamicina presentes em meio aquoso. Tese (Doutorado). Belo Horizonte: Universidade Federal de Minas Gerais, 211 p., 2014.

[13] RIVERA-UTRILLA, J.; SÁNCHEZ-POLO, M.; FERRO-GARCÍA, M. Á.; PRADOS-JOYA, G.; OCAMPOPÉREZ, R. Pharmaceuticals as emerging contaminants and their removal from water: A review. *Chemosphere*, v. 93, p. 1268-1287, 2013.

[14] MIRANDA, C. D.; CASTILLO, G. Resistance to antibiotic and heavy metals of motile aeromonads from Chilean freshwater. *Science of the total environment*, v. 224, n. 1-3, p. 167-176, 1998.

[15] BROWN, K.D.; KULIS, J.; THOMSON, B.; CHAPMAN, T.H.; MAWHINNEY, D.B. Occurrence of antibiotics in hospital, residential, and dairy effluent, municipal wastewater, and the Rio Grande in New Mexico. *Sci. Total Environ.*, v. 366, n. 2-3, p. 772-783, 2006.

[16] HAO, R.Z.; ZHAO, R.T.; QIU, S.F.; WANG, L.G.; SONG, H.B. Antibiotics crisis in China. *Science*, v. 348, 2015.

[17] ECDPC. Antimicrobial resistance surveillance in Europe. European Centre for Disease Prevention and Control. 2013.

[18] CDC. Centers for Disease Control and Prevention. Antibiotic resistance threats in the United States. U. S. Department of Health and Human Services. 113 p. 2013.

- [19] WALKER, T. 5 most over-prescribed antibiotics. 2015. Disponível em: <<http://drugtopics.modernmedicine.com/drug-topics/news/5-most-over-prescribed-antibiotics?page=full>> Acesso em: 13 mai. 2018.
- [20] MARTINS, N. B.; SOUSA, L. M. G. de; TORRES, M. L. D.; FIRMO, W. da C. A. Análise de prescrição médica de antibióticos de uma farmácia comercial do município de Imperatriz - MA. Revista Científica do ITPAC, Araguaína, v. 7, n. 4, 2014.
- [21] PAULA, C. G. D. de. Análise de prescrições de medicamentos antimicrobianos dispensados em uma farmácia comunitária do município de João Pessoa/ PB. 8 ed. Revista Especialize On-line IPOG. Goiânia, v. 1, n. 9, 2014.
- [22] OLIVEIRA, K.R.; DESTEFANI, S.R.A. Perfil da prescrição e dispensação de antibióticos para crianças em uma Unidade Básica de Saúde (UBS) no município de Ijuí – RS. Rev. Ciênc. Farm. Básica Apl., v. 3, n. 32, 8 p., 2011.
- [23] EMEA. Committee for veterinary medicinal products. UK: Veterinary Medicines Evaluation Unit. 8 p., 1999.
- [24] UNIÃO EUROPEIA. Decisão de Execução (UE) 2015/495 da Comissão. Jornal Oficial da União Europeia. 2015. Disponível em: <<http://eur-lex.europa.eu/legal-content/PT/TXT/PDF/?uri=CELEX:32015D0495&from=EN>> Acesso em: 14 mai. 2018.
- [25] BILA, D. M.; DEZOTTI, M. Desreguladores endócrinos no meio ambiente: efeitos e consequências. Química Nova, v. 30, n. 3, p. 651-666, 2007.
- [26] BOUKI, C.; VENIERI, D.; DIAMADOPOULOS, E. Detection and fate antibiotic resistant bacteria in wastewater treatment plants: A review. Ecotoxicology and Environmental Safety, v. 91, p. 1-9, 2013.
- [27] MARCELINO, R. B. P.; FRADE, P. R.; AMORIM, C. C.; LEÃO, M. M. D. Tendências e desafios na aplicação de tecnologias avançadas para o tratamento de efluentes industriais não biodegradáveis: atuação do grupo de pesquisas POA Control da UFMG. Belo Horizonte: Rev. UFMG, v. 20, n. 2, p. 358-383, 2013.
- [28] TAMBOSI, J. L. Remoção de fármacos e avaliação de seus produtos de degradação através de tecnologias avançadas de tratamento. Tese (Doutorado). Universidade Federal de Santa Catarina. Florianópolis: 2008. 141 p.
- [29] DENG, Y.; ZHAO, R. Advanced Oxidation Processes (AOPs) in Wastewater Treatment. Current Pollution Reports, v. 1, n. 3, p. 167-176, 2015.
- [30] BAIRD, C., RECIO, M. A. L., CARRERA, L. C. M. Química ambiental. 2. Ed. Porto Alegre: Bookman, 2002.
- [31] LEVENSPIEL, O. Engenharia das reações químicas. 3. Ed. São Paulo: Ed. Edgar Blucher, 2000.
- [32] GUO, W.; WANG, H.; SHI, Y.; ZHANG, G. Sonochemical degradation of the antibiotic cephalixin in aqueous solution, Water SA, Vol. 36, n. 5, 651-654, 2010.
- [33] COLLADO, N., RODRIGUEZ-MOAZ, S., GROS, M., RUBIROLA, A., BARCELÓ, D., COMAS, J., RODRIGUEZ-RODA, I., BUTTIGLIERI, G. Pharmaceuticals occurrence in a WWTP with significant industrial contribution and its input into the river system. Environmental Pollution, v. 185, p. 202-212, 2014
- [34] BANSAL, P.; VERMA, A.; AGGARWAL, K.; SINGH, A.; GUPTA, S.; Investigations on the Degradation of an Antibiotic Cephalixin using Suspended and Supported TiO<sub>2</sub>: Mineralization and Durability Studies, The Canadian Journal of Chemical Engineering, Vol. 94, 1269-1276, 2016.
- [35] SACAMOTO, P. H. Avaliação dos processos Fenton e Fotofenton aplicado no tratamento de um efluente sintético contendo o antibiótico amoxicilina. Dissertação (mestrado) – Ribeirão Preto: Universidade de Ribeirão Preto, 106 p., 2014.
- [36] SOUZA, B.S. Avaliação do processo H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/UV como pós-tratamento e remoção da atrazina de um efluente secundário de ETE para fins de reuso. Rio de Janeiro, RJ. Tese (Doutorado). Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, 165 p., 2011.
- [37] GÓMEZ-PACHECO, C. V.; SANCHEZ-POLO, M.; RIVERA-UTRILLA, J.; LOPEZ-PENALVER, J. J. Tetracycline degradation in aqueous phase by ultraviolet radiation. Chem. Eng. J., v. 187, p. 89-95. 2012.
- [38] MARCELINO, R. B. P. Aplicação de Processos Oxidativos Avançados para o tratamento de efluente da produção de antibióticos. Dissertação (Mestrado). Belo Horizonte: Universidade Federal de Minas Gerais. 148 p. 2014.
- [39] MINH, T. B.; LEUNGA, H. W.; LOI, H.; CHAN, W. H.; SO, M. K.; MAO, J. K.; CHOI, D.; LA., J. C. W.; ZHENG, L. G.; MARTIN, M.; LEE, J. H. W.; LAM, P. K. S. RICHARDSON, B. J. Antibiotics in the Hong Kong metropolitan area: Ubiquitous distribution and fate in Victoria Harbour. Marine Pollution Bulletin, v. 58, n. 7, p. 1052-1062, 2009.
- [40] CONSTANZO, S. D.; MURBY, J.; BATES, J. Ecosystem response to antibiotics entering the aquatic environment. Marine Pollution Bulletin, v. 51, p. 218-223, 2005.
- [41] SAMPAIO, N. M. F. M.; MICHELETTO, J. Avaliação da eficiência do processo UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> no tratamento de efluente kraft e da toxicidade para *Daphnia magna*. Trabalho de Conclusão de Curso. Universidade Tecnológica Federal do Paraná. Curitiba. 60 p. 2013.
- [42] SÁNCHEZ, J. C. D.; DALLAROSA, J. B.; Avaliação do desempenho de espectrofotômetro ultravioleta e visível, Boletim Técnico 28, Secretaria da C